

09/807997

JC08 Rec'd PCT/PTO 04 MAY 2001

DOCKET NO.: 206542US0PCT

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

IN RE APPLICATION OF: OZAWA, Yoichi et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HERewith

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP99/06159

INTERNATIONAL FILING DATE: November 5, 1999

FOR: METHOD FOR CLASSIFYING SPECIFIC TISSUE OF OILSEEDS OR CEREALS AND  
FINELY CRUSHED POWDERS**REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119**  
**AND THE INTERNATIONAL CONVENTION**Assistant Commissioner for Patents  
Washington, D.C. 20231

Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

<b><u>COUNTRY</u></b>	<b><u>APPLICATION NO</u></b>	<b><u>DAY/MONTH/YEAR</u></b>
Japan	10-314150	05 November 1998
Japan	10-336688	27 November 1998

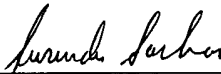
Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. **PCT/JP99/06159**. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,  
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,  
MAIER & NEUSTADT, P.C.



22850

(703) 413-3000  
Fax No. (703) 413-2220  
(OSMMN 1/97)

  
Norman F. Oblon  
Attorney of Record  
Registration No. 24,618  
Surinder Sachar  
Registration No. 34,423

日 本 国 特 許 庁  
PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

PCT/JP99/06159

05.11.99  
EJ

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されて  
いる事項と同一であることを証明する。  
This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed  
with this Office.

出 願 年 月 日  
Date of Application:

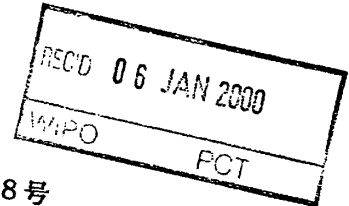
1998年11月27日

出 願 番 号  
Application Number:

平成10年特許願第336688号

出 願 人  
Applicant (s):

味の素株式会社



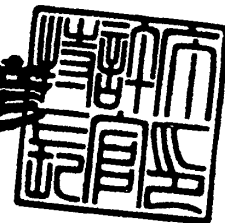
PRIORITY  
DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

1999年12月10日

特許庁長官  
Commissioner,  
Patent Office

近藤 隆彦



出証番号 出証特平11-3085367

【書類名】 特許願

【整理番号】 AB98018

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 A23L  
B02C

【発明の名称】 油糧種子又は穀類の特定組織の分級法

【請求項の数】 10

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県川崎市川崎区鈴木町1番1号  
味の素株式会社食品総合研究所内

【氏名】 小澤 洋一

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県千葉市美浜区新港230番  
東洋製油株式会社内

【氏名】 上野 午良

【発明者】

【住所又は居所】 千葉県千葉市美浜区新港230番  
東洋製油株式会社内

【氏名】 中谷 明浩

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県川崎市川崎区鈴木町1番1号  
味の素株式会社食品総合研究所内

【氏名】 吉田 照男

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県川崎市川崎区鈴木町1番1号  
味の素株式会社食品総合研究所内

【氏名】 森永 康

【特許出願人】

【識別番号】 000000066

【氏名又は名称】 味の素株式会社  
【代理人】  
【識別番号】 100100181  
【弁理士】  
【氏名又は名称】 阿部 正博  
【手数料の表示】  
【予納台帳番号】 053419  
【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
【物件名】 明細書 1  
【物件名】 図面 1  
【物件名】 要約書 1  
【ブルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 油糧種子又は穀類の特定組織の分級法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 油糧種子又は穀類由来の特定組織から成る原料を粉碎し、分級することから成る、該特定組織の微細構造部分由来の分画物の製造方法。

【請求項 2】 特定組織が種皮であることを特徴とする、請求項 1 に記載の製造方法。

【請求項 3】 種皮が、大豆種皮、コーン外皮、菜種種皮、ゴマ種皮及び粉殻より成る群から選択されることを特徴とする、請求項 2 に記載の製造方法。

【請求項 4】 特定組織が胚芽であることを特徴とする、請求項 1 に記載の製造方法。

【請求項 5】 胚芽が、大豆胚芽、コーン胚芽、小麦胚芽、及び米胚芽より成る群から選択されることを特徴とする、請求項 4 に記載の製造方法。

【請求項 6】 特定組織が油脂抽出粕又は蛋白抽出粕であることを特徴とする、請求項 1 に記載の製造方法。

【請求項 7】 油脂抽出粕又は蛋白抽出粕が、脱脂米糠、コーン胚芽粕、大豆乾燥おから、菜種粕及びゴマ粕より成る群から選択されることを特徴とする、請求項 6 に記載の製造方法。

【請求項 8】 粉碎された微細構造部分の比重又は粒度の差異に基づいて分級することを特徴とする、請求項 1 ないし 7 項のいずれか一項に記載の製造方法。

【請求項 9】 原料が請求項 1 ないし 7 項のいずれか一項に記載の製造方法によって得られた分画物であることを特徴とする、請求項 1 ないし 7 項のいずれか一項に記載の製造方法。

【請求項 10】 請求項 1 ないし 9 のいずれか一項に記載された方法によって得られる、油糧種子又は穀類由来の特定組織の微細構造部分由来の分画物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、油糧種子（油脂を多く含む種子類）又は穀類由来の種皮、胚芽及び油脂抽出粕又は蛋白抽出粕等の特定組織から成る原料を粉碎し、分級することから成る、該特定組織の微細構造部分の分画物の製造方法に関する。

# 【0002】

## 【従来の技術】

油脂、蛋白、及び澱粉等の製造用に、我が国が毎年、外国から輸入する大豆、菜種、コーン、小麦等の油糧種子や穀物の量は膨大であり、主としてそれらの子葉や胚乳が利用される。通常、子葉、胚乳及び胚芽からn-ヘキサンを用いて油分を抽出し、大豆の場合は抽出粕から更に水を用いて蛋白質を抽出する。

従来から、コーンや小麦の胚乳から澱粉を、また丸大豆の子葉や脱脂大豆から蛋白を乾式で分離することを目的とするドライミリングと呼ばれる技術が知られている。

又、特許公報第2803853号には、小麦フスマから高蛋白区分と高食物繊維区分を分離する方法が開示されており、この方法は、小麦フスマを粉碎した後に、粒度が $300 \pm 25 \mu$ 以下 $100 \pm 25 \mu$ 以上の区分と、粒度が $100 \pm 25 \mu$ 以下の区分に分級することを特徴とするものである。

しかしながら、それら以外の組織由来の原料、又は子葉、胚乳、及び胚芽の抽出粕については、一部を除いては飼料、或いは肥料として安価に取引されているのが現状である。従って、それらの更なる高度利用が従来から求められている。

# 【0003】

これらの資源は従来、飼料、肥料として用いること以外には、多糖の抽出原料として用いたり（例えば、特開昭64-62303、特開平5-262802）、全体を微細粉化して食品素材として利用する例（特公平3-69270：湿式法によるコロイドミル・マスコロイダーで100ミクロン以下に粉碎したコーンファイバー、又は、特開平3-67595：湿式法によるホモゲナイザーで、平均粒度25ミクロン以下に粉碎した生おから）が知られている。

# 【0004】

## 【発明が解決しようとする課題】

油糧種子及び穀物の組織を微細に観察するとその構造は決して均一ではなく、

例えば層状等の不均一な構造をなしている。不均一な構造の各微細構造部分はそれぞれ化学的成分や、物理的性質が異なることが期待される。従って、仮にそれらを分画することが出来れば、その組織全体としては十分現れない化学的、物理的諸性質が顕在化・顕著化する可能性がある。

【0005】

しかしながら、こうした考え方に立ち、油糧種子及び穀物の組織を更に微細構造部分に分画する例は、従来の技術の欄で紹介した場合以外には、知られていない。

そこで、本発明者はピンミル等の粉碎機により、予め油糧種子や穀物の特定組織を数ミクロンから数百ミクロンに粉碎した後、例えば、これを風力や篩により分級すると、各微細構造部分間の比重の違い、砕け易さに起因すると思われる粒度の違い等の物理的諸性質の差異により、それらの分画が可能であることを見出し、本発明を完成した。

【0006】

【課題を解決するための手段】

即ち、本発明は、油糧種子又は穀類由来の特定組織から成る原料を粉碎し、それらを分級することから成る、該特定組織の微細構造部分由来の分画物の製造方法に係わる。

本明細書中で、「油糧種子又は穀類由来の特定組織」とは、子葉、胚乳及び小麦フスマ以外の組織であって、更にそれらの微細な構造に分画できるようなものであればどのようなものでもよく、例えば、種皮、胚芽、油脂抽出粕及び蛋白抽出粕等である。

それらの好適例として、大豆種皮、コーン外皮、菜種種皮、ゴマ種皮、籾殻、大豆胚芽、コーン胚芽、小麦胚芽、米胚芽、脱脂米糠、コーン胚芽粕、大豆乾燥おから、菜種粕、及びゴマ粕を挙げることが出来る。

上記特定組織から成る原料は、粉碎するに際し、予め乾燥する等して水分含量を調整しても良いし、入手出来るままの状態で使用しても良い。

更に、二種類以上の特定組織を適当な割合で混合して成るものを本発明方法の原料として使用することも出来る。

## 【0007】

粉碎は当業者に公知の任意の装置・方法で行うことが出来、湿式でも乾式でも良い。湿式の場合は粉碎後、乾燥する必要がある。一般にピンミルの如く強いずれの力が働く粉碎機他、マスコロイダー、衝撃式粉碎機、及びジェットマイザー等を使用すると、効率よく油糧種子及び穀物の組織微細構造が、互いに効率良く剥離等により分離され、それらの混合物になるので、これらの装置を使用することが好ましい。

何種類かの粉碎方法を組み合わせることも可能であり、粉碎の程度等の各種粉碎条件は、原料の種類、目的とする分画物の用途、分級方法等に応じて、当業者が適宜設定することが出来る。例えば、原料の微細構造がバラバラになるように原料を数 $\mu\text{m}$ ～数100 $\mu\text{m}$ 程度に粉碎する。

## 【0008】

分級は当業者に公知の任意の装置・方法で行うことが出来、各微細構造部分の何らかの物理化学的性質、例えば、それらの粒度及び比重等の違いを利用した分級法であれば何でも良い。例えば専用の風力分級機及び篩を挙げることが出来る。又、ジェットミル等を用いた場合のように、粉碎と分級を同時に行うことも可能である。

分級の程度（得られる分画の数）等の各種分級条件は、原料の種類、目的とするの用途、粉碎方法等に応じて、当業者が適宜設定することが出来る。

しかしながら、後述の実施例で示されるように、50%粒度が数 $\mu\text{m}$ ～十数 $\mu\text{m}$ の分画物と、50%粒度が数十 $\mu\text{m}$ ～百数十 $\mu\text{m}$ 数の分画物に分級すると、これら分画物には、その元の組織全体としては十分現れない化学的、物理的諸性質が顕在化・顕著化する可能性が高くなる為に、好ましい。

又、こうした分級の結果得られた分画物の一種又は複数種からなる混合物を、本発明方法における原料として再び用いて、これを粉碎した後、それらを分級することも可能である。

## 【0009】

更に、本発明は、こうした製造方法によって得られる、油糧種子又は穀類由来の特定組織の微細構造部分由来の分画物に係わる。



特に、50%粒度が数 $\mu\text{m}$ ～十数 $\mu\text{m}$ 数、例えば、3 $\mu\text{m}$ ～15 $\mu\text{m}$ の分画物は優れた性質を有する為に好適である。

本発明の分画物は、必ずしも一種類の微細構造部分のみに由来するものとは限らない。粉碎及び分級の条件等によって、二種類以上の微細構造部分の粉碎物を含有する分画物であり得る。

後の実施例で示されているように、これら本発明の分画物は、その元の組織全体としては十分現れない化学的、物理的諸性質が顕在化・顕著化しており、そのまま各種食品（製菓、製パン類用、デザート類、油脂食品、乳化食品、液状食品、食物繊維強化食品、低カロリー食品、低脂肪食品、栄養成分強化食品、畜産・水産加工品等）用素材、飼料、及び化成品素材等として利用することが出来る。又、各分画物の化学的成分含量の差異を利用して、油脂又は蛋白質等の特定成分を効率的に抽出するための原料として使用することが出来る。

#### 【0010】

##### 【発明の実施の形態】

以下の実施例中の50%粒度測定はエタノール中でMICROTRAC II DRY SYSTEM (NIKKISO)を用いて行った。尚、本明細書中における「50%粒度」とは、各粒度の積算分布曲線の50%に相当する粒子径であり、「50%径 $D_{50}$ 」と同義である。

T-N (Total Nitrogen) 値はケルダール法 (KJELTEC AUTO 1030 Analyzer) により求めた。

以下、実施例を参照しながら本発明を具体的に説明する。尚、本発明の技術的範囲が実施例によって限定されないことは言うまでもない。

#### 【0011】

##### 【実施例1】

大豆種皮をピンミルで粉碎した。例えばピンミルがパールマン・ユニバーサルミルPXの場合、回転数17,000/分、チャージ量約60Kg/時間の条件でこれを行った。得られた粉碎物の50%粒度は150 $\mu\text{m}$ であった。これを再度同一条件で粉碎し直すと、同じく75 $\mu\text{m}$ 、更にもう一度粉碎すると同じく43 $\mu\text{m}$ 、更にもう一度粉碎すると同じく28 $\mu\text{m}$ の微細粉化大豆種皮が得られた。

(表1)。次にこれを風力分級機で分画した。分級条件は表2に示す。又、分級結果を表3に示す。

【0012】

【表1】

	ビソノ粉碎回数	50%粒度
大豆 豆皮	1回	150 $\mu$ m
	2回	75
	3回	(43)
	4回	28

【0013】

【表2】

原料	50%粒度	風量	分級回転数	供給能力
ビソノ1回処理豆皮	150 $\mu$ m	1 m <sup>3</sup> /min	3,000 rpm	1440 g/h
2回処理豆皮	75 "	"	5,000	1280
4回処理豆皮	28 "	"	5,000	975

【0014】

【表3】

原料豆皮		風力分級分画物							
		微粉				粗粉			
		色	50%粒度	収量%	T-N%	色	50%粒度	収量%	T-N%
50%粒度									
ビソノ1回処理	150 μm	灰白色	26 μm	37	5.65	セピア色	223 μm	63	1.64
2回処理	75 "	灰白色	12 "	36	6.16	セピア色	163 "	64	1.78
4回処理	28 "	灰白色	11 "	44	4.11	セピア色	77 "	56	1.31

【0015】

表3が示すように、微粉（軽い）と粗粉（重い）とに分画出来、それぞれ色、50%粒度、T-N値が互いに異なった。これらは顕微鏡的にも形態が異なっており、微細構造の違いを反映していると思われる。尚、風力分級分画前の各原料の色は薄セピア色であった。

次に表 2 中のピンミル 4 回処理物の風力分級により得られた微粉及び粗粉の成分含量の分析値を表 4 に示す。

【0016】

【表 4】

試料	水分%	蛋白質%	脂質%	繊維%	灰分%	糖質%	食物繊維	エネルギー
微粉	7.2	24.0	6.2	13.0	6.8	42.8	47.4	375kcal
粗粉	6.8	8.0	1.7	37.6	4.3	41.6	76.5	364 "

(日本食品分析センター分析)

【0017】

表 4 に示すように、水分、蛋白質、脂質、繊維、灰分、糖質、食物繊維及びエネルギーの分析値は両者で顕著に異なっており、本発明方法によって大豆種皮の微細な部分構造が分画されていることを示している。

表 2 中のピンミル 2 回処理物の風力分級により得られた大豆種皮由来の微粉と粗粉の粒度分布図の一例を図 1 に示す。図 1 が示すように大豆種皮の分級分画が可能であり、又、得られた分画をさらに細かく分級分画することも出来る。

【0018】

【実施例 2】

乾燥おから、コーン胚芽粕、及び大豆胚芽を原料として用いて、本発明方法を実施した。

原料の乾燥おから（生おからの凍結乾燥品）、コーン胚芽粕、及び大豆胚芽（予め 80℃ 以上に加熱したもの）をピンミルで 1 回粉碎した。これらをそれぞれジェットミルで更に粉碎しつつ（空気圧 7kg/cm<sup>2</sup>、ノズル 3φ、11,500 rpm）風力分級し、機械上部から排出される微粉とジェットミル内に残る粗粉とに分級分画した。

得られた分級結果を表 5 に示す。

【0019】

【表 5】

	原料		分画物			
	ピンミル 1 回粉碎		微粉		粗粉	
	50%粒度	T-N	50%粒度	T-N	50%粒度	T-N
乾燥おから	93 $\mu\text{m}$	6.06%	3.1 $\mu\text{m}$	4.57%	10.4	6.34%
コーン胚芽粕	361	2.72	5.0	3.18	24.0	2.56
大豆胚芽	54	6.03	3.4	5.89	22.0	6.21

## 【0020】

得られた微粉のT-N値は原料のそれとは異なっていた。これにより、粉碎された原料は、そのミクロな部分構造を反映する微粉と粗粉とに分画されていると考えられる。

## 【0021】

## 【実施例 3】

実施例 1 に記載した条件に従ってピンミル粉碎処理を 2 回行って得られた大豆種皮粉碎物（50%粒度：75  $\mu\text{m}$ ）を 60～400 メッシュの各種振動篩を用いて 5 分間篩分し、得られた各分画の重量を計算し、又、それらの 50%粒度を測定した。結果を表 6 に示す。

表 6 の結果から、250～400 メッシュ、80～120 メッシュの分画物に重量のピークが認められ、それらの 50%粒度は、それぞれ 39  $\mu\text{m}$  及び 172  $\mu\text{m}$  であった。又、400 メッシュを境として微粉と粗粉とに分ければ、その比は 31:69 となり、篩によっても本発明方法における分級は可能であることが判る。

## 【0022】

【表 6】

メッシュ	400 以下	250-400	200-250	120-200	80-120	60-80	60 以上	
重量%	3.6	27.2	12.5	18.8	19.1	12.2	6.6	100%
50%粒度	18	39	64	125	172	247	386	

## 【0023】

#### 【実施例 4】

実施例 1 に記載した条件に従ってピンミル粉碎処理を 2 回行って得られた大豆種皮粉碎物（50%粒度：75  $\mu$ m）を、実施例 1 に記載した条件に従って、風力分級し、微粉（50%粒度：12  $\mu$ m）と粗粉（50%粒度：163  $\mu$ m）の各分画物を得た。

次に、これらの各分画物を原料として使用して、水溶性蛋白質及び多糖類の抽出を試みた。

50g に水 500ml を加え、pH9 に合わせた後、室温で 60 分間攪拌抽出後、遠沈し、不溶物を除去した。上澄液を凍結乾燥し、固形物を得た。表 7 に水抽出条件と抽出率、抽出物 T-N 値を示す。

表 7 が示すように、微粉を用いた場合、大豆種皮全体の粉碎物から抽出する場合に比較して抽出率が向上していることが分かる。また、T-N 値も大豆種皮全体の粉碎物から抽出する場合に比較して大きく、大豆種皮蛋白を抽出する場合、原料として微粉が有利であることを示す。

【0024】

【表 7】

原料	pH9、室温、60分間での水抽出収率	T-N
豆皮全体の粉碎物	12%	4.1%
微粉	25	6.2
粗粉	8	2.3

【0025】

#### 【実施例 5】

実施例 4 で得られた大豆種皮粉碎物（50%粒度：75  $\mu$ m）、微粉（50%粒度：12  $\mu$ m）及び粗粉（50%粒度：163  $\mu$ m）を原料として、これらから n-ヘキサンを用いてそれらに含まれている油分を抽出し、薄層クロマトグラフィー、続いてガスクロマトグラフィーを用いて総植物ステロール量を測定した（日本油化学協会偏、基準油脂分析法による。）。

その結果を表 8 に示す。表 8 に示されるように、粗粉中の油分は 1.7% と少

ない一方、植物ステロールの濃度は22.7%と通常の大豆油の約56倍であった。一方、微粉中の油分は6.2%と粗粉と比較すると約3.6倍多いが、植物ステロールの濃度は粗粉油分中の約1/5であった。このように大豆種皮粉碎物を分画後に、抽出することにより、大豆種皮に局在化している、例えば、コレステロールの吸収を妨げ、或いは体内からの排出を促すものとして知られている植物ステロール等のような、有用な特定成分をより効率的に高濃度で抽出することが可能である。従って、本発明の分画物である、ここで得られた粗粉は植物ステロールに富む油分の原料として好都合である。

【0026】

【表8】

	油分%	油分中の総植物ステロール%
豆皮	3.1	9.1
風力分級大豆種皮微粉	6.2	4.7
粗粉	1.7	22.7
(参考値) 通常大豆	18~20	0.4

【0027】

## 【実施例6】

実施例4で得られた微粉(50%粒度:12 $\mu$ m)及び粗粉(50%粒度:163 $\mu$ m)のそれぞれ20gに水200mlを加え、pH4.5及び室温下で、60分間攪拌しながら水で抽出した。遠沈により固形物を分け、得られた抽出液を凍結乾燥し、そのアミノ酸分析を行った。その結果を表9に示す。表9に示されるように、本発明の分画物である大豆種皮粗粉画分は、水抽出中のHO-Pro含量が著しく多いことから、大豆種皮に含まれるHO-Proに富む蛋白質の抽出原料として有用である。

【0028】

【表 9】

	(mole%) :
	HO-Pro
微粉	0.0
粗粉	4.1
(*) 大豆ゲルリン	0.0

## 【図面の簡単な説明】

## 【図 1】

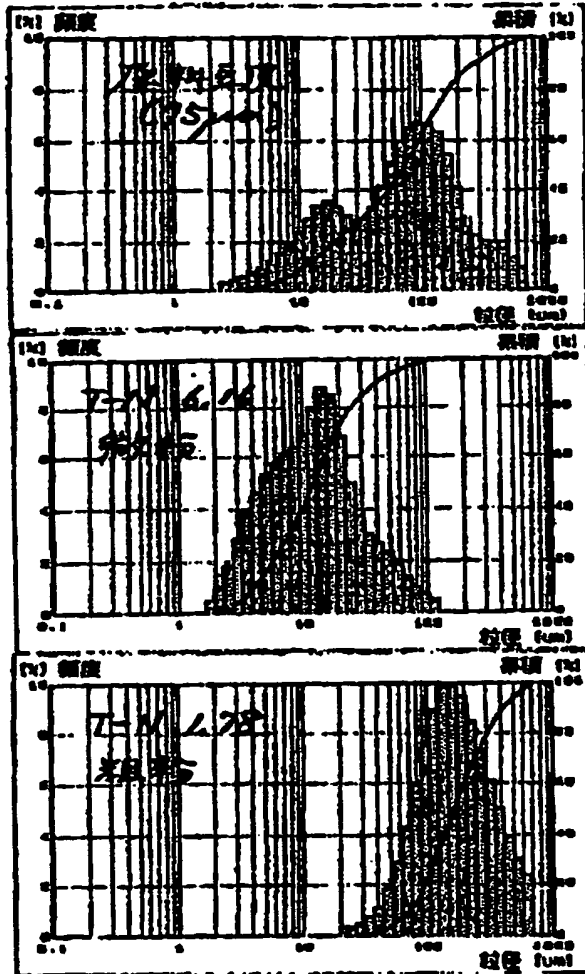
実施例 1 においてピンミル 2 回処理で得られた微細粉化大豆種皮（50%粒度：75  $\mu\text{m}$ ）（A）、及びこれを風力分級により分級して得られた大豆種皮由来の微粉（50%粒度：12  $\mu\text{m}$ ）（B）と粗粉（50%粒度：163  $\mu\text{m}$ ）（C）のそれぞれの粒度分布図を示す。

尚、各図中、棒グラフは左縦軸に目盛られた頻度（%）を、折れ線は右軸に目盛られた累積（%）を示し、横軸は粒径（ $\mu\text{m}$ ）を表わす。

【書類名】

図面

【図1】



(A)

(B)

(C)



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 油糧種子及び穀物の組織の各微細構造部分を分画し、その組織全体としては十分現れない化学的、物理的諸性質が顕在化・顕著化させること。

【解決手段】 油糧種子又は穀類由来の特定組織から成る原料を粉碎し、それらを分級することから成る、該特定組織の微細構造部分由来の分画物の製造方法

【選択図】 図1

【書類名】 職権訂正データ  
【訂正書類】 特許願

<認定情報・付加情報>

【提出日】 平成10年11月27日

【特許出願人】

【識別番号】 000000066

【住所又は居所】 東京都中央区京橋1丁目15番1号

【氏名又は名称】 味の素株式会社

【代理人】 申請人

【識別番号】 100100181

【住所又は居所】 千葉県船橋市前原西2-14-1 ダイアパレス津  
田沼317 阿部内外特許事務所

【氏名又は名称】 阿部 正博

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000000066]

1. 変更年月日 1991年 7月 2日  
[変更理由] 住所変更  
住 所 東京都中央区京橋1丁目15番1号  
氏 名 味の素株式会社